

02.12.03

日 本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類は下記の出願書類の謄本に相違ないことを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

2002年12月 6日

出 願 番 号

Application Number:

PCT/JP02/12815

出 願 人

Applicant (s):

北海道ティー・エル・オー株式会社
古月 文志

RECEIVED

09 JAN 2004

WIPO

PCT

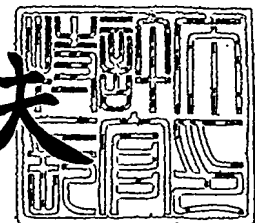
BEST AVAILABLE COPY

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003 年 12 月 18 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証平 15-500384

0	受理官庁記入欄	
0-1	国際出願番号	PCT/JP02/12815
0-2	国際出願日	06.12.02
0-3	(受付印)	PCT International Application 日本国特許庁
0-4	様式-PCT/RO/101 この特許協力条約に基づく国際出願願書は、 右記によって作成された。	PCT-EASY Version 2.92 (updated 01.10.2002)
0-5	申立て 出願人は、この国際出願が特許協力条約に従って処理されることを請求する。	
0-6	出願人によって指定された受理官庁	日本国特許庁 (RO/JP)
0-7	出願人又は代理人の書類記号	FP2557PCT
I	発明の名称	ナノカーボン溶解性水溶液、精製用水溶液及び精製方法
II	出願人	
II-1	この欄に記載した者は	出願人である (applicant only)
II-2	右の指定国についての出願人である。	米国を除くすべての指定国 (all designated States except US)
II-4ja	名称	北海道ティー・エル・オー株式会社
II-4en	Name	HOKKAIDO TECHNOLOGY LICENSING OFFICE CO., LTD.
II-5ja	あて名:	060-0807 日本国 北海道 札幌市北区 北7条西2丁目8番地1
II-5en	Address:	8-1, Nishi 2-chome, Kita 7-jyo, Kita-ku, Sapporo-shi, Hokkaido 060-0807 Japan
II-6	国籍 (国名)	日本国 JP
II-7	住所 (国名)	日本国 JP
III-1	その他の出願人又は発明者	
III-1-1	この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-1-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-1-4ja	氏名 (姓名)	古月 文志
III-1-4en	Name (LAST, First)	FUUGETSU, Bunshi
III-1-5ja	あて名:	065-0027 日本国 北海道 札幌市東区 北27条東16丁目1番38号
III-1-5en	Address:	1-38, Higashi16-chome, Kita 27-jyo, Higashi-ku, Sapporo-shi, Hokkaido 065-0027 Japan
III-1-6	国籍 (国名)	日本国 JP
III-1-7	住所 (国名)	日本国 JP


特許協力条約に基づく国際出願願書

原本（出願用） - 印刷日時 2002年12月06日 (06. 12. 2002) 金曜日 11時15分28秒

IV-1	代理人又は共通の代表者、通知のあて名 下記の者は国際機関において右記のごとく出願人のために行動する。	代理人 (agent)
IV-1-1ja	氏名 (姓名)	津国 肇
IV-1-1en	Name (LAST, First)	TSUKUNI, Hajime
IV-1-2ja	あて名:	105-0001 日本国 東京都 港区 虎ノ門1丁目22番12号 SVAX TSビル
IV-1-2en	Address:	SVAX TS Bldg., 22-12, Toranomon 1-chome, Minato-ku, Tokyo 105-0001 Japan
IV-1-3	電話番号	03-3502-7213
IV-1-4	ファクシミリ番号	03-3502-7218
IV-1-5	電子メール	ip-firm.fp@tsukuni.gr.jp
V	国の指定	
V-1	広域特許 (他の種類の保護又は取扱いを求める場合には括弧内に記載する。)	AP: GH GM KE LS MW MZ SD SL SZ TZ UG ZM ZW 及びハラレプロトコルと特許協力条約の締約国である他の国 EA: AM AZ BY KG KZ MD RU TJ TM 及びユーラシア特許条約と特許協力条約の締約国である他の国 EP: AT BE BG CH&LI CY CZ DE DK EE ES FI FR GB GR IE IT LU MC NL PT SE SK TR 及びヨーロッパ特許条約と特許協力条約の締約国である他の国 OA: BF BJ CF CG CI CM GA GN GQ GW ML MR NE SN TD TG 及びアフリカ知的所有権機構と特許協力条約の締約国である他の国
V-2	国内特許 (他の種類の保護又は取扱いを求める場合には括弧内に記載する。)	AE AG AL AM AT AU AZ BA BB BG BR BY BZ CA CH&LI CN CO CR CU CZ DE DK DM DZ EC EE ES FI GB GD GE GH GM HR HU ID IL IN IS JP KE KG KP KR KZ LC LK LR LS LT LU LV MA MD MG MK MN MW MX MZ NO NZ OM PH PL PT RO RU SC SD SE SG SI SK SL TJ TM TN TR TT TZ UA UG US UZ VC VN YU ZA ZM ZW
V-5	指定の確認の宣言 出願人は、上記の指定に加えて、規則4.9(b)の規定に基づき、特許協力条約のもとで認められる他の全ての国の指定を行う。ただし、V-6欄に示した国の指定を除く。出願人は、これらの追加される指定が確認を条件としていること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認がなされない指定は、この期間の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされることを宣言する。	
V-6	指定の確認から除かれる国	なし (NONE)
VI	優先権主張	なし (NONE)

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本（出願用） - 印刷日時 2002年12月06日（06.12.2002）金曜日 11時15分28秒

VII-1	特定された国際調査機関 (ISA)	日本国特許庁 (ISA/JP)	
VIII	申立て	申立て数	
VIII-1	発明者の特定に関する申立て	-	
VIII-2	出願し及び特許を与えられる国際出願日における出願人の資格に関する申立て	-	
VIII-3	先の出願の優先権を主張する国際出願日における出願人の資格に関する申立て	-	
VIII-4	発明者である旨の申立て（米国を指定国とする場合）	-	
VIII-5	不利にならない開示又は新規性喪失の例外に関する申立て	-	
IX	照合欄	用紙の枚数	添付された電子データ
IX-1	願書（申立てを含む）	4	-
IX-2	明細書	8	-
IX-3	請求の範囲	1	-
IX-4	要約	1	EZABST00. TXT
IX-5	図面	0	-
IX-7	合計	14	
	添付書類	添付	添付された電子データ
IX-8	手数料計算用紙	✓	-
IX-9	個別の委任状の原本	✓	-
IX-17	PCT-EASYディスク	-	フレキシブルディスク
IX-18	その他	納付する手数料に相当する特許印紙を貼付した書面	-
IX-18	その他	国際事務局の口座への振込を証明する書面	-
IX-19	要約書とともに提示する図の番号		
IX-20	国際出願の使用言語名:	日本語	
X-1	提出者の記名押印		
X-1-1	氏名 (姓名)		

受理官庁記入欄

10-1	国際出願として提出された書類の実際の受理の日	06.12.02
10-2	図面:	
10-2-1	受理された	
10-2-2	不足図面がある	
10-3	国際出願として提出された書類を補完する書類又は図面であってその後期間内に提出されたものの実際の受理の日（訂正日）	
10-4	特許協力条約第11条(2)に基づく必要な補完の期間内の受理の日	
10-5	出願人により特定された国際調査機関	ISA/JP
10-6	調査手数料未払いにつき、国際調査機関に調査用写しを送付していない	



国際事務局記入欄

11-1	記録原本の受理の日	
------	-----------	--

明 細 書

ナノカーボン溶解性水溶液、精製用水溶液及び精製方法

技術分野

5 本発明は、ナノカーボン粗生成物から高純度のナノカーボンを簡単に得るための技術に関するものであり、特に、カーボンナノチューブを溶解させることが可能な水溶液、精製用水溶液及びそれを用いた精製方法に関する技術である。

背景技術

10 ナノカーボンとは、カーボンナノチューブに代表される、エネルギー、エレクトロニクス、化学、医薬品、光学部品、材料・機械等の各種分野で注目されている新素材である。ここで、カーボンナノチューブには、単層・多層タイプとカップスタック型が存在し、単層・多層タイプのものは、直径がナノメートルオーダーの針状炭素分子であり、グラフェンを円筒状に丸めた構造を持っている。そして、グラフェン円筒が同心円状に多層構造をなしているものをマルチウォールカーボンナノチューブといい、単層のグラフェン円筒のみからなるものをシングルウォールカーボンナノチューブという。

15 ところで、従来より、数多くのカーボンナノチューブ粗生成物を精製する手法が提供されている。例えば、特開 2000-290008 には、カーボンチューブを含む粗生成物を金コロイド溶液に分散させる第一の工程と、前記粗生成物を含む金コロイド溶液から溶媒を除去する第二の工程と、前記粗生成物を酸素雰囲気下で加熱する第三の工程よりなるカーボンチューブの精製法が開示されている。この技術は、金が微粒子になると触媒として作用し、炭素を低温で酸化させる性質を持つという原理を利用したものである。

20 ここで、特開 2000-290008 記載の技術では、用いられる溶液の溶媒の一例は水であるが、カーボンナノチューブ自体は、水溶液中に分散した状態で存在しており溶解はしていない。

25 更に、第 51 回高分子討論会予稿集 2002.10.2-4 九工大（北九州）には、単層カーボンナノチューブを水に可溶化する技術が開示されている。しかし、こ

の技術は、ビレン基を持つ両親媒性化合物でカーボンナノチューブを表面処理してその表面を親水性化することにより、カーボンナノチューブ自体を水に可溶化するものである。このように、表面を修飾させた場合、用途によってはその修飾を後で外す必要があり、非常に面倒という問題が存する。

5 本発明は、ナノカーボン表面を修飾することなく、ナノカーボンを水に可溶化
する新規な技術の提供を目的とする。

発明の開示

10 本発明（１）は、界面活性剤、ナノカーボン透過性物質及び酸化剤を含有し、
かつ、アルカリ性である、ナノカーボンを溶解しうる水溶液である。

 本発明（２）は、該界面活性剤が、リン脂質系界面活性剤又は非リン脂質系活
性剤である、前記発明（１）の水溶液である。

15 本発明（３）は、該界面活性剤が、ジステアロイルホスファチジルコリン（D
S P C）、ジミリストイルホスファチジルコリン（D M P C）、ジパルミトリルホ
スファチジルコリン（D P P C）、３－〔（３－コラミドプロピル）ジメチルアミ
ノ〕－２－ヒドロキシ－１－プロパンスルホン酸（C H A P S O）、３－〔（３－
コラミドプロピル）ジメチルアミノ〕－プロパンスルホン酸（C H A P）及び
N，N－ビス（３－D－グルコナミドプロピル）－コラミドからなる群より選択
される１種以上である、前記発明（２）の水溶液である。

20 本発明（４）は、該界面活性剤が、該水溶液中で、直径が５０～３００nmの
小胞体を形成しうる、前記発明（１）～（３）のいずれか一つの水溶液である。

 本発明（５）は、該透過性物質が、リチウムイオンである、前記発明（１）～
（４）のいずれか一つの水溶液である。

25 本発明（６）は、酸化剤が過硫酸塩である、前記発明（１）～（５）のいずれ
か一つの水溶液である。

 本発明（７）は、ナノカーボンが、カーボンナノチューブ（単層・多層タイプ、
カップスタック型）又はカーボンナノホーンである、前記発明（１）～（６）の
いずれか一つの水溶液である。

 本発明（８）は、ナノカーボン精製用である、前記発明（１）～（７）のい

れか一つの水溶液である。

本発明（９）は、ナノカーボンを含む粗生成物を、前記発明（８）の水溶液中に添加して、ナノカーボンを該水溶液に溶解させる工程を含む、ナノカーボン精製方法である。

5 本発明（１０）は、ナノカーボンを含む粗生成物の製造方法において金属触媒が使用された場合、該水溶液に該粗生成物を添加する前に、該粗生成物を酸で処理する工程を更に含む、前記発明（９）のナノカーボン精製方法である。

発明を実施するための最良の形態

10 まず、本発明に係るナノカーボンを溶解しうる水溶液に含まれる界面活性剤について説明する。界面活性剤の種類は特に限定されず、例えば、以下で述べるようなリン脂質系界面活性剤及び非リン脂質系活性剤のいずれも用い得る。

ここで、「リン脂質系界面活性剤」とは、リン酸基を官能基とする陰イオン性界面活性剤・両性イオン界面活性剤であり、リン脂質（グリセロリン脂質、スフィンゴリン脂質の両方を含む）及び改質リン脂質（例えば、水素添加リン脂質、リゾリン脂質、酵素変換リン脂質、リゾホスファチジルグリセロール、他の物質との複合体）のいずれでもよい。このようなリン脂質は、生物を構成する細胞の種々の膜系、例えば原形質膜、核膜、小胞体膜、ミトコンドリア膜、ゴルジ体膜、リソソーム膜、葉緑体膜、細菌細胞膜に存在し、好適には、リボソームの調製に用いられるリン脂質が好適である。具体的には、例えば、ホスファチジルコリン〔例えば、ジステアロイルホスファチジルコリン（DSPC）、ジミリストイルホスファチジルコリン（DMPC）、ジパルミトリルホスファチジルコリン（DPPC）〕、ホスファチジルエタノールアミン、ホスファチジルイノシトール、ホスファチジルセリン、ホスファチジルグリセロール、ジホスファチジルグリセロール、リゾホスファチジルコリン、スフィンゴミエリンを挙げることができる。

また、「非リン脂質系界面活性剤」とは、リン酸基を官能基として含まない非イオン型界面活性剤・両性イオン型界面活性剤であり、 $3-[(3-コラミドプロピル)ジメチルアミノ]-2-ヒドロキシー-1-プロパンスルホン酸$ （CHA

PSO)、3-[(3-コラミドプロピル)ジメチルアミノ]ープロパンスルホン酸(CHAP)及びN,N-ビス(3-D-グルコナミドプロピル)ーコラミドを挙げることができる。

加えて、本発明に係るナノカーボンを溶解しうる水溶液に含まれる界面活性剤として、特にカーボンナノチューブを溶解させるためには、水溶液中で直径が50～300nmの小胞体(球状ミセル)を形成するようなものを選択することが好適である。この大きさの小胞体が好適である理由は定かでないが、現時点では、以下のような理由ではないかと推察している。カーボンナノチューブの長さは、通常、100～1000nmの範囲にある。そして、本発明に係る水溶液を用いた場合、カーボンナノチューブは、数分の一程度(例えば四分の一程度)の長さに折り畳まれ、その結果、溶液中では数十nm～数百nmの長さになる。恐らく、上記のサイズが、この折り畳まれたカーボンナノチューブを小胞体内に収納するのに丁度良く、結果、カーボンナノチューブを効率的に可溶化できるためと理解される。

尚、従来にも界面活性剤を添加する技術はある(特開2002-255528)が、それにより形成されるミセルは、0.1nm程度と非常に小さいものであり、そのミセル表面にカーボンナノチューブが付着するという原理である。本発明は、ミセル表面でなく、ミセル(小胞体)の内部にナノカーボン(例えばカーボンナノチューブ)を格納するという新規な着想に基づくものである。

なお、本明細書にいう「小胞体」とは、界面活性剤により形成されたミセルであって、球状のような収納空間を持つものをいう。例えば、リン脂質系界面活性剤の場合には、該小胞体はリポソームといわれる。また、この小胞体の直径は、光散乱法に従って測定された値を指す。尚、上で具体的に挙げた界面活性剤はいずれも、水溶液中で直径が50～300nmの小胞体を形成しうる。

界面活性剤の含有量は、小胞体を形成する臨界ミセル濃度以上である必要がある。通常、粗生成物1g用の水溶液1リットル当たり、0.2～10mmolである。

次に、本発明に係るナノカーボン溶解性水溶液に含まれるナノカーボン透過

性物質について説明する。「ナノカーボン透過性物質」とは、ナノカーボンのC-C格子サイズより小さい直径を有する物質を意味する。例えば、このような直径（イオン径）を有するナノカーボン透過性カチオン、具体的には、リチウムイオンを挙げることができる。但し、水素イオンは、格子サイズより小さいが、オキソニウムイオンの形で水に奪われてしまうため、ナノカーボン透過性カチオンとしては不適切である。尚、ナノカーボン透過性物質の役割は現時点では解明されていないが、例えば、ナノカーボン透過性カチオンの場合には、ナノカーボン内に入り込むことにより、ナノカーボン内部の電荷状態を変え、と共に、ナノカーボン内部の表面及び内部の不純物を押し出す役割を担うと推察される。

このナノカーボン透過性物質の含有量は、ナノカーボン粗生成物1g用水溶液の場合、水溶液1リットル当たり、好適には0.1~1molである。

次に、本発明に係るナノカーボン溶解性水溶液に含まれる酸化剤について説明する。使用可能な酸化剤は、特に限定されないが、過硫酸塩（液中では過硫酸イオン）が好適である。その理由は、過硫酸塩が、アルカリ性で活性が高いことに加え、酸化した後自身は硫酸になるので、後処理が容易であるからである。

次に、本発明に係るナノカーボン溶解性水溶液のpHについて説明する。pHは、アルカリ性であり、10~14の範囲であることが好適である。液がアルカリ性であることが必要な理由は定かでないが、ナノカーボンの表面の電子状態を変えることに加え、カーボンナノチューブの場合には、カーボンの表面を柔らかくし、カーボンナノチューブを折り畳む役割を担っていると推察される。

次に、本発明に係るナノカーボンを溶解しうる水溶液をナノカーボン精製のために用いる方法（即ち、本発明に係る精製方法）につき説明する。

本精製方法で精製可能なナノカーボンを含む粗生成物は特に限定されず、例えば、電気放電法(C. Journet et al., Nature 388, 756 (1997))及びD.S. Bethune et al., Nature 363, 605 (1993))、レーザー蒸着法(R.E. Smalley et al., Science 273, 483 (1996))、気相合成法

(R.Andrews et al., Chem. Phys. Lett., 303, 468, 1999)、熱化学気相蒸着法(W.Z.Li et al., Science, 274, 1701 (1996)、Shinohara et al., Jpn. J. Appl. Phys. 37, 1257 (1998))、プラズマ化学気相蒸着法(Z.F.Ren et al., Science. 282, 1105 (1998))等、いずれの合成方法により得られた粗生成物に対しても有効である。

尚、合成に際し金属触媒が用いられた粗生成物に関しては、本発明に係る精製用水溶液に加える前に、酸で処理して金属触媒を除去することが好適である。酸処理に関しては、例えば、特開2001-26410記載のように、酸水溶液としては硝酸溶液または塩酸溶液を用い、例えば、硝酸溶液は50倍の水に希釈された溶液を、塩酸溶液も50倍の水に希釈された溶液を使用する手法を挙げることができる。そして、このように酸処理した後、洗浄し、フィルタリングし、以後の溶解処理に付する。

次に、ナノカーボン（例えばカーボンナノチューブ）を含有する粗生成物を、本発明に係る精製用水溶液に投入する。ここで、投入量に関しては特に限定されないが、通常、精製用水溶液1リットルに対し、粗生成物1～5gである。

投入後、ナノカーボン（例えばカーボンナノチューブ）を完全に溶解させるため、好適には、最初に超音波で5分程度ほぐす。その後、室温だと6時間程度、60℃に加温すると数分程度で完全に溶解する。

完全に溶解した後、慣用手法によりナノカーボン（例えばカーボンナノチューブ）を溶液から取り出す。例えば、ナノカーボン（例えばカーボンナノチューブ）溶液をクロマトグラフィーに付し、大きさ毎に分取した後、ナノカーボン（例えばカーボンナノチューブ）分画に水を入れ、臨界ミセル濃度未満とすることで、ナノカーボン（例えばカーボンナノチューブ）を取り出すことができる。

このように、本発明によれば、ナノカーボンの合成方法に応じて発生する各種不純物、例えば、黒鉛などの不要な炭素不純物や遷移金属を、安価でかつ効率的に除去することが可能となる。

以下、本発明を実施例により具体的に説明する。尚、本発明はこの実施例に限定されるものではない。

<カーボンナノチューブ精製用水溶液の調製>

以下の表1の配合に従い、カーボンナノチューブ精製用水溶液を調整した。そして、水溶液中の小胞体の直径を、大塚電子のELS-8000で計測した。

表1

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6
包摂小胞体 (mM)	DSPC 0.3	DMPC 0.3	DPPC 0.3	CHAPSO 5.0	CHAPS 5.0	Big-CHAP 5.0
LiOH (M)	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
(NH ₄) ₂ S ₂ O ₈ (M)	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05
小胞体の直径 (nm)	100	200	300	56	51	76
水溶液のpH	12	12	12	12	12	12

実施例1

<脱触媒処理>

CVD粗単層カーボンナノチューブ（純度約30%）1gを、先ず、塩酸／硝酸（0.1M／0.1M）の混合酸溶液1000mlで30分間、脱触媒処理をした（60℃）後、5NのNaOH水溶液で中和し、恒温槽（85℃）で3時間乾燥した。

<精製処理>

前記脱触媒処理で得たカーボンナノチューブを、1リットルのカーボンナノチューブ精製用水溶液に添加し、超音波で約10分間ほぐした。そして、このカーボンナノチューブ／カーボンナノチューブ精製用水溶液の混合体を、湯浴中で、室温から60℃に上昇させ約10分間放置すると、カーボンナノチューブは完全に水溶液に溶解した。

<回収処理>

前記の精製処理で得られたカーボンナノチューブ溶液に大量の水を入れ、臨界ミセル濃度未満とすることで、カーボンナノチューブが析出した。このカーボンナノチューブの回収率を測定したところ、99.5%であった。

実施例 2 ～ 6

実施例 1 と同様の方法でカーボンナノチューブの回収率を測定した。その結果を表 2 に示す。

表 2

	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6
回収率 (%)	75.1	78.2	23.8	23.5	45.2

請 求 の 範 囲

1. 界面活性剤、ナノカーボン透過性物質及び酸化剤を含有し、かつ、アルカリ性である、ナノカーボンを溶解しうる水溶液。

5 2. 該界面活性剤が、リン脂質系界面活性剤又は非リン脂質系活性剤である、請求の範囲第1項記載の水溶液。

3. 該界面活性剤が、ジステアロイルホスファチジルコリン (DSPC)、ジミリスチルホスファチジルコリン (DMPC)、ジパルミトリルホスファチジルコリン (DPPC)、3-[(3-コラミドプロピル) ジメチルアミノ] -2-ヒドロキシ-1-プロパンスルホン酸 (CHAPSO)、3-[(3-コラミドプロピル) ジメチルアミノ] -プロパンスルホン酸 (CHAP) 及びN, N-ビス(3-D-グルコナミドプロピル) -コラミドからなる群より選択される1種以上である、請求の範囲第2項記載の水溶液。

10 4. 該界面活性剤が、該水溶液中で、直径が50～300 nm の小胞体を形成しうる、請求の範囲第1項～第3項のいずれか一項記載の水溶液。

5. 該透過性物質が、リチウムイオンである、請求の範囲第1項～第4項のいずれか一項記載の水溶液。

6. 酸化剤が過硫酸塩である、請求の範囲第1項～第5項のいずれか一項記載の水溶液。

20 7. ナノカーボンが、カーボンナノチューブ(単層・多層タイプ、カップスタック型)又はカーボンナノホーンである、請求の範囲第1項～第6項のいずれか一項記載の水溶液。

8. ナノカーボン精製用である、請求の範囲第1項～第7項のいずれか一項記載の水溶液。

25 9. ナノカーボンを含む粗生成物を、請求の範囲第8項記載の水溶液中に添加して、ナノカーボンを該水溶液に溶解させる工程を含む、ナノカーボン精製方法。

10. ナノカーボンを含む粗生成物の製造方法において金属触媒が使用された場合、該水溶液に該粗生成物を添加する前に、該粗生成物を酸で処理する工程を更に含む、請求の範囲第9項記載のナノカーボン精製方法。

要 約 書

例えばナノカーボン精製のために用いられる、界面活性剤、ナノカーボン透過性物質及び酸化剤を含有し、かつ、アルカリ性である、ナノカーボンを溶解する水溶液。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.